

JCO6 Rec'd PCT/PTO 17 OCT 2005

Mixing fluids using adjacent micro structures generating diffusion or turbulence

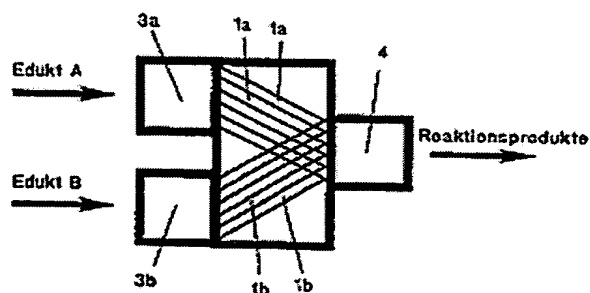
Patent number: DE4433439
Publication date: 1996-03-21
Inventor: SCHUBERT KLAUS DR (DE); BIER WILHELM DR (DE); LINDER GERD DR (DE); SEIDEL DIETER DR (DE); MENZEL THOMAS DR (DE); KOGLIN BERND PROF DR (DE); PREISIGKE HANS-JOERG DR (DE); HERRMANN ERHARD DR (DE)
Applicant: KERNFORSCHUNGSZ KARLSRUHE (DE); BAYER AG (DE)
Classification:
- **international:** B01J19/00; B01F5/06
- **european:** B01F5/02C; B01F5/06B3C4; B01F13/00; B01F13/00M; B01J19/00R; B01J19/24D; F28D9/00F2; F28F3/04
Application number: DE19944433439 19940920
Priority number(s): DE19944433439 19940920

BEST AVAILABLE COPY

Report a data error here

Abstract of DE4433439

A reaction process and assembly mixes two or more gaseous and/or liquid reactants (educts) (A, B) which are divided by their respective micro channel assemblies (1a, 1B) into spatially separated fine fluid flows. The novelty is that these separated fine fluid laminar flows then enter a common mixing and reaction chamber (4), microchannels bearing the same educt (A, B) emerging at the same speeds. The educts (A, B) enter the mixing/reaction chamber (4) as free jets (6a, 6b), each free jet (6a) being led to the mixing/reaction chamber (4) immediately adjacent to a free jet (6b) from a different duct (B). Adjacent free jets then mix by diffusion and/or turbulence.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide



⑮ **BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND**



**DEUTSCHES
PATENTAMT**

⑩ **Offenlegungsschrift
DE 44 33 439 A 1**

⑤① Int. Cl.⁸:
B 01 J 19/00
B 01 F 5/06

②① Aktenzeichen: P 44 33 439,7
②② Anmeldetag: 20. 9. 94
②③ Offenlegungstag: 21. 3. 98

DE 44 33 439 A 1

⑦① **Anmelder:**

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, 76133
Karlsruhe, DE; Bayer AG, 51373 Leverkusen, DE

⑦② **Vertreter:**

Gremm, J., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat., 51467 Bergisch
Gladbach

⑦③ **Erfinder:**

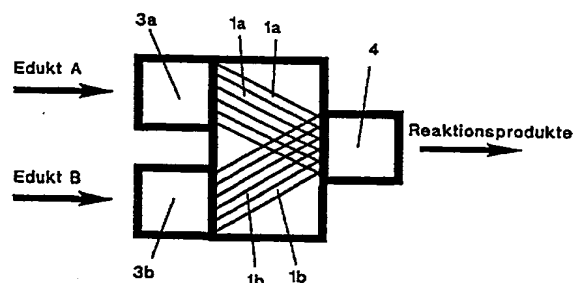
Schubert, Klaus, Dr., 76227 Karlsruhe, DE; Bier,
Wilhelm, Dr., 76344 Eggenstein-Leopoldshafen, DE;
Linder, Gerd, Dr., 76149 Karlsruhe, DE; Seidel,
Dieter, Dr., 76344 Eggenstein-Leopoldshafen, DE;
Menzel, Thomas, Dr., 40723 Hilden, DE; Koglin,
Bernd, Prof. Dr., 51467 Bergisch Gladbach, DE;
Preisigke, Hans-Joerg, Dr., 51065 Köln, DE;
Herrmann, Erhard, Dr., 51373 Leverkusen, DE

⑤⑥ **Für die Beurteilung der Patentfähigkeit
in Betracht zu ziehende Druckschriften:**

DE	31 14 195 A1
DD	1 28 156
US	37 04 008
EP	4 89 211 A1

⑤④ **Verfahren zur Durchführung chemischer Reaktionen mittels Mikrostruktur-Mischung**

⑤⑦ Bei dem Reaktionsverfahren werden mindestens zwei Edukte A, B durch eine ihnen jeweils zugeordnete Schar von Mikrokanälen 1a, 1b in räumlich getrennte Fluidfäden aufgeteilt, die anschließend in einen gemeinsamen Misch- und Reaktionsraum 4 austreten. Wesentlich ist dabei, daß man die Fluidfäden der Edukte A, B als Freistrahlen 6a, 6b in den Misch/Reaktionsraum 4 austreten läßt, wobei jeder Freistrahle 6a eines Eduktes A in unmittelbarer Nachbarschaft zu einem Freistrahle 6b eines anderen Eduktes B in den Misch/Reaktionsraum 4 geführt wird. Die benachbarten Freistrahlen 6a, 6b vermischen sich dann anschließend durch Diffusion und/oder Turbulenz. Dadurch wird der Vermischungsvorgang im Vergleich zu konventionellen Reaktoren wesentlich beschleunigt. Bei schnellen chemischen Reaktionen wird dadurch die Bildung von unerwünschten Neben- bzw. Folgeprodukten weitgehend verhindert.



DE 44 33 439 A 1

DE 44 33 439 A1

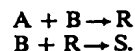
1

Beschreibung

Zur Durchführung einer chemischen Reaktion in kontinuierlicher Fahrweise müssen die Reaktionspartner kontinuierlich einem chemischen Reaktor zugeführt werden und mit Hilfe eines Mischorgans (Mischers) in-
 5 nig in Kontakt gebracht, d. h. gut vermischt werden. Ein einfacher Reaktor ist z. B. ein Behälter mit einem Rührer als Mischorgan. Im Regelfall laufen im Reaktor bei Kontakt der Reaktanden mehrere Reaktionen, sogenannte Haupt- und Nebenreaktionen ab. Dabei ist es
 10 Ziel des Verfahrensingeniieurs, die Reaktionen und damit auch die Vermischung so zu führen, daß selektiv eine möglichst hohe Ausbeute an erwünschtem Produkt erzielt wird.

Die Güte der Vermischung und der Einfluß des Mischorgans auf die Ausbeute an erwünschtem Produkt hängt dabei in großem Maße vom Verhältnis der durch die Reaktionskinetik gegebenen chemischen Reaktions-
 15 geschwindigkeit zur Mischgeschwindigkeit ab. Handelt es sich bei den chemischen Reaktionen um langsame Reaktionen, so ist die chemische Reaktion in der Regel wesentlich langsamer als die Vermischung. Die Brutto-Reaktionsgeschwindigkeit und die Ausbeute an erwünschtem Produkt wird dann durch den langsamsten
 20 Schritt, nämlich die Kinetiken der ablaufenden chemischen Reaktionen, und dazu durch das globale Vermischungsverhalten (Verweilzeitverteilung, Makromischung) des verwendeten chemischen Reaktors bestimmt. Liegen die chemischen Reaktionsgeschwindigkeiten und die Vermischungsgeschwindigkeit in der
 25 gleichen Größenordnung, so kommt es zu komplexen Wechselwirkungen zwischen den Kinetiken der Reaktionen und dem lokalen, durch die Turbulenz bestimmten Vermischungsverhalten im verwendeten Reaktor und am Mischorgan (Mikromischung). Tritt der Fall ein, daß die chemischen Reaktionsgeschwindigkeiten wesentlich schneller sind als die Mischgeschwindigkeit so
 30 werden die Brutto-Geschwindigkeiten der ablaufenden Reaktionen und die Ausbeuten im wesentlichen durch die Vermischung, d. h. durch das lokale, zeitabhängige Geschwindigkeits- und Konzentrationsfeld der Reaktanden, d. h. die Turbulenzstruktur im Reaktor bzw. am Mischorgan bestimmt [1].

Der Einfluß der Vermischung auf den Ablauf einer chemischen Reaktion ist besonders groß bei Reaktionen mit konkurrierenden Folgereaktionen. Am Beispiel dieses Reaktionsschemas läßt sich der oben dargestellte Sachverhalt vertiefend erläutern (s. Fig. 1):



In einem ersten Reaktionsschritt reagieren die beiden Reaktanden A und B zum erwünschten Produkt R. Diesem folgt ein zweiter Reaktionsschritt, bei dem das gewünschte Produkt R mit weiterer Ausgangskomponente B zum unerwünschten Folgeprodukt S weiterreagiert. Wichtig bei der Reaktionsführung ist, daß das erwünschte Zwischenprodukt R nicht mit noch nicht reagiertem B in Kontakt kommt und der Reaktor möglichst rückvermischungsfrei gefahren wird.

Im chemischen Reaktor bedeutet dies schematisch vereinfacht folgendes: Zum Zeitpunkt t_1 liegen die Ausgangssubstanzen in Fluidballen nebeneinander vor. Anschließend ($t_2 > t_1$) bildet sich an der Stelle, an der die Fluidballen miteinander mischen das erwünschte Produkt R. Ist die Mischung langsamer als die Reaktionsge-
 65

2

schwindigkeit der Folgereaktionen, so bildet sich beim Kontakt des erwünschten Zwischenproduktes R mit noch nicht reagiertem Edukt B das unerwünschte Folgeprodukt S. Das heißt zur Vermeidung des unerwünschten Folgeproduktes S müssen die Ausgangskomponenten A und B möglichst schnell miteinander gemischt werden. Diese Problematik wird immer größer, je schneller die Reaktionen gegenüber der Vermischung ablaufen.

10 Nach dem Stand der Technik werden zur Durchführung schneller Reaktionen in Konti-Fahrweisen eine Reihe von Mischorganen eingesetzt. Man kann hier unterscheiden zwischen dynamischen Mischern, wie z. B. Rührer, Turbinen oder Rotor-Stator-Systemen, statischen Mischern, wie z. B. Kenics-Mischern, Schaschlik-Mischern oder SMV-Mischern und Strahlmischern, wie z. B. Düsenmischern oder T-Mischer [2-4].

Bevorzugt werden zur schnellen Vermischung der Ausgangsstoffe bei schnellen Reaktionen mit unerwünschten Folge- bzw. Nebenreaktionen Düsenmischer eingesetzt.

Bei Strahl- bzw. Düsenmischern wird eine der beiden Ausgangskomponenten mit hoher Strömungsgeschwindigkeit in die andere Komponente verdüst (s. Fig. 2). Dabei wird die kinetische Energie des eingedüsteten Strahles (B) im wesentlichen hinter der Düse dissipiert, d. h. durch turbulenten Zerfall des Strahles in Wirbel und weiteren turbulenten Zerfall der Wirbel in immer kleinere Wirbel in Wärme umgewandelt. In den Wirbeln sind jeweils die Ausgangskomponenten enthalten, die in den Fluidballen nebeneinander vorliegen (Makromischung, vgl. schematische Darstellung in Fig. 1). Zwar tritt an den Rändern dieser zunächst größeren Strukturen zu Beginn des turbulenten Wirbelzerfalls eine geringe Mischung durch Diffusion auf. Die vollständige Vermischung wird jedoch erst erreicht, wenn der Wirbelzerfall soweit fortgeschritten ist, daß mit Erreichen von Wirbelgrößen in der Größenordnung des Konzentrations-Mikromaßes (Batchelor-Länge) [5, 6] die Diffusion schnell genug ist, um die Ausgangskomponenten in den Wirbeln vollständig miteinander zu vermischen. Die für die vollständige Vermischung nötige Mischzeit hängt neben den Stoffdaten und der Geometrie der Apparatur im wesentlichen von der spezifischen Energiedissipationsrate ab.

Die Vermischungsvorgänge bei den häufig zur Anwendung kommenden Mischern nach dem Stand der Technik sind prinzipiell ähnlich (bei dynamischen Mischern und Statikmischern werden die Wirbel noch zusätzlich mechanisch zerteilt bei allerdings in der Regel wesentlich niedrigeren spezifischen Energiedissipationsraten). Dies bedeutet, daß bei den nach dem Stand der Technik verwendeten Mischern bis zur vollständigen Vermischung durch Diffusion immer die Zeit des Wirbelzerfalls vergeht. Für sehr schnelle Reaktionen bedeutet dies, daß entweder sehr hohe Energiedissipationsraten eingestellt werden müssen, um unerwünschte Neben- und Folgereaktionen zu vermeiden oder bei Reaktionen mit noch größeren Reaktionsgeschwindigkeiten die entsprechenden Reaktionen nicht optimal, d. h. nur bei Neben- bzw. Folgeproduktbildung, durchgeführt werden.

Weiterhin ist im Stand der Technik die Vermischung zweier Komponenten in einem Mikrostruktur-Reaktor beschrieben [7]. In einem Mikroreaktor zur Durchführung chemischer Reaktionen mit starker Wärmetönung werden die Eduktströme innerhalb einer Mikrostruktur kontinuierlich miteinander gemischt. Die Mischung er-

DE 44 33 439 A1

3

folgt über querlaufende Rillen, die die beiden Stoffströme miteinander verbinden. Dabei stellen die innerhalb der Mikrostruktur vorliegenden Rillen die Mischräume dar. Dieser Mischer hat den Vorteil, daß die einzelnen Stoffströme schon innerhalb der Mikrostruktur in feine Volumenelemente aufgeteilt werden, ohne daß die Stoffströme dabei miteinander in Kontakt geraten. Dadurch wird ein Teil der Mischzeit, die durch den turbulenten Zerfall der Wirbel, wie sie in herkömmlichen Mischern benötigt wird, gespart und die Mischung erfolgt schneller. Da jedoch die Rillen verschiedene Längen aufweisen hat diese Art des Mischens jedoch den Nachteil, daß dadurch in den einzelnen Kanälen unterschiedliche Druckverluste auftreten. Dies hat zur Folge, daß die Komponenten an verschiedenen Stellen in der Mischkammer mit unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeiten austreten. Damit ergibt sich eine örtlich inhomogene Vermischung innerhalb der Struktur, die bei schnellen Reaktionen zu unerwünschten Folge- und Nebenreaktionen führen kann.

Ausgehend von diesem Stand der Technik liegt der Erfindung folgende Aufgabenstellung zugrunde. Ziel ist es, die Mischung möglichst schnell durchzuführen, um die Bildung von Folge- bzw. Nebenprodukten zu vermeiden. Dabei muß erreicht werden, daß die Edukte homogen miteinander gemischt werden, so daß innerhalb kürzester Zeit keine örtlichen und keine zeitlichen Überkonzentrationen der Edukte mehr auftreten.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß mindestens zwei Edukte A, B durch eine ihnen jeweils zugeordnete Schar von Mikrokanälen in einem Mikrostruktur-Mischer in räumlich getrennte Fluidfäden aufgeteilt werden, die dann als Freistrahlen mit für das jeweilige Edukt gleichen Strömungsgeschwindigkeiten in einen Misch-/Reaktionsraum austreten, wobei jeder Freistrahle eines Eduktes A in unmittelbarer Nachbarschaft zu einem Freistrahle eines anderen Eduktes B in den Misch- und Reaktionsraum geführt wird und sich die benachbarten Freistrahlen durch Diffusion und/oder Turbulenz miteinander vermischen. Vorzugsweise werden in den Mikrokanälen laminare Strömungsbedingungen für die Edukte A, B aufrechterhalten. Es steht jedoch nichts im Wege, gegebenenfalls mit turbulenten Strömungen in den Mikrokanälen zu arbeiten.

Besonders bewährt hat sich eine Ausführungsform, bei der die Fluidfäden der Edukte A, B in abwechselnd übereinanderliegenden oder nebeneinanderliegenden Schichten in den Misch-/Reaktionsraum austreten.

Durch eine entsprechende Anordnung der Mikrokanäle läßt sich auch erreichen, daß die Fluidfäden der Edukte A, B schachbrettartig in den Misch-/Reaktionsraum austreten.

Die Geometrie des Mikrostruktur-Mischers ist in vorteilhafter Weise so ausgelegt, daß der Durchmesser bzw. die Dicke der Freistrahlen am Eintritt in den Misch-/Reaktionsraum auf einen Wert zwischen 20 µm und 250 µm, vorzugsweise zwischen 50 µm und 150 µm, eingestellt werden kann. Dabei liegt vorteilhaft das Verhältnis von Mittenabstand benachbarter Freistrahlen zum Durchmesser der Freistrahlen in einem Bereich von 1,1 bis 2, vorzugsweise 1,3 bis 1,5.

Eine Weiterentwicklung des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, daß in Nachbarschaft zu einem Freistrahle eines Eduktes zusätzlich ein Freistrahle eines temperierten inerten Fluids zu Heiz- oder Kühlzwecken in den Misch-/Reaktionsraum eingespeist wird. Das erfindungsgemäße Verfahren beruht also darauf, daß die Eduktströme A, B zunächst mittels des Mikrostruktur-

4

Mischers konvektiv in feine Volumenelemente bzw. Fluidfäden mit einem Gitterabstand d aufgeteilt werden, die sich dann nach dem Austritt im Misch-/Reaktionsraum durch Diffusion und/oder Turbulenz miteinander vermischen.

Die Aufgabe des Mikrostruktur-Mischers ist es dabei, die Eduktströme konvektiv zu zerteilen und feine Fluidfäden mit einer charakteristischen Dicke d zu erzeugen, ohne daß die Ausgangskomponenten miteinander in Kontakt kommen. Durch gleiche geometrische Dimensionierung (gleicher Querschnitt und gleiche Länge) für die jeweils einem Edukt zugeordneten Mikrokanäle wird sichergestellt, daß aus allen jeweils einem Edukt zugeordneten Kanälen die Fluidfäden mit gleichen Strömungsgeschwindigkeiten austreten. Bei zwei Edukten A, B sind also die Strömungsgeschwindigkeiten in den Mikrokanälen jeweils für ein Edukt untereinander gleich. Die Strömungsgeschwindigkeiten der beiden Edukte (im Verhältnis zueinander) können aber durchaus unterschiedlich sein.

Dadurch wird örtlich eine möglichst homogene Eduktverteilung erreicht. Vorzugsweise wird eine Dicke d eingestellt, die in der Größenordnung des Konzentrations-Mikromaßes liegt, so daß nach Austritt aus dem Mikrostruktur-Mischer, ohne daß ein weiterer Wirbelzerfall nötig ist, die Mikromischung der Komponenten schnell durch Diffusion erfolgen kann.

Das erfindungsgemäße Verfahren ermöglicht es, die Zeit für den turbulenten Wirbelzerfall bei der Vermischung im wesentlichen einzusparen und dadurch den Vermischungsvorgang wesentlich zu beschleunigen. Durch das Zerteilen der Eduktströme in feinste Volumenelemente innerhalb der Mikrostruktur, ohne daß die Eduktströme miteinander in Kontakt geraten und die homogene Verteilung der Edukte am Austritt aus der Mikrostruktur ermöglicht das Vermischungsverhalten von nahezu einem idealen Rohrreaktor einzustellen. Bei schnellen Reaktionen treten unerwünschte Neben- bzw. Folgeprodukte in wesentlich geringerem Maße auf als bei Mischern nach dem Stand der Technik.

Im folgenden wird die Erfindung anhand von Ausführungsbeispielen und Zeichnungen näher erläutert. Es zeigen

Fig. 1 schematisch die Vermischung und Reaktion von zwei Reaktanden in Form von Fluidballen A, B (Stand der Technik),

Fig. 2 die Vermischung zweier Reaktanden A, B (Edukte) in einem Strahl-/Düsenmischer (Stand der Technik),

Fig. 3 den prinzipiellen Aufbau eines Mikrokanalmischers für zwei Edukte A, B mit symmetrischen Strömungswegen,

Fig. 4 die Vermischung der aus dem Mikrokanalmischer in den Misch- bzw. Reaktionsraum eintretenden, den Edukten A, B zugeordneten Freistrahlen,

Fig. 5 eine Ausführungsform, bei der die räumliche Anordnung der den Edukten A, B zugeordneten Fluidfäden beim Eintritt in den Misch-/Reaktionsraum durch abwechselnd übereinanderliegende Schichten charakterisiert ist,

Fig. 6 eine zu Fig. 5 alternative Ausführungsform bei der die Fluidfäden der Edukte A, B schachbrettartig in den Misch-/Reaktionsraum austreten,

Fig. 7 ein Fließschema für eine Apparatur zur Untersuchung chemischer Reaktionen die nach dem erfindungsgemäßen Verfahren ablaufen und

Fig. 8 die mit der Apparatur gemäß Fig. 7 erzielten Versuchsergebnisse bei der Azokupplungsreaktion von

DE 44 33 439 A1

5

α -Naphtol mit 4-Sulfonsäurebenzoldiazoniumsalz.

In Fig. 3 ist ein zur Durchführung des erfindungsge-
mäßes Verfahrens geeigneter Mikrostruktur-Mischer
schematisch dargestellt. Das Bauprinzip dieses Mixers
beruht darauf, daß verschiedene Lagen der Platten mit
schrägverlaufenden Nuten oder Rillen vertikal überein-
ander in Sandwichbauweise gestapelt sind. Ein derarti-
ger Aufbau ist z. B. in DE 39 26 466 insbesondere im
Zusammenhang mit Fig. 1, beschrieben. Auf diese Be-
schreibung wird ausdrücklich Bezug genommen.

Auf eine Platte mit den Rillen oder Mikrokanälen 1a
folgt jeweils eine Platte mit den Mikrokanälen 1b; d. h.
zwei im Stapel unmittelbar übereinander angeordnete
Platten sind jeweils mit einer Schar von Mikrokanälen
1a, 1b versehen, wobei die Mikrokanalscharen aufeinander-
folgender Platten einen Winkel α miteinander bilden
und symmetrisch zur Horizontalachse in Fig. 3, d. h.
spiegelbildlich zueinander angeordnet sind. Die Platten
haben z. B. eine Dicke von 100 μ m. Die lichte Weite der
Mikrokanäle liegt typischerweise in der Größenord-
nung von 70 μ m. Die für die Herstellung solcher Mi-
krokanäle erforderlichen Werkzeuge und Vorrichtungen
sind z. B. in der DE 37 09 278 beschrieben.

Die in Fig. 3 von der Bildmitte aus gesehen schräg
nach oben verlaufenden Scharen von Mikrokanälen 1a
münden linksseitig in eine Verteilerkammer 3a, der ein
Reaktand oder Edukt A zugeführt werden kann. Analog
münden die schräg nach unten verlaufenden Scharen
der Mikrokanäle 1b linksseitig in eine Verteilerkammer
3b, der ein Edukt B (Reaktand) zugeführt werden kann.
Beide Scharen von Mikrokanälen münden rechtsseitig,
ohne sich zu durchkreuzen, in einen gemeinsamen
Misch-/Reaktionsraum 4 ein. Die spiegelsymmetrische
Anordnung der Mikrokanäle 1a, 1b ist nicht zwingend
erforderlich. Die Mikrokanäle 1b können z. B. auch eine
andere Neigung gegen die Horizontalachse haben als
die Mikrokanäle 1a.

Wichtig ist jedoch, daß die Mikrokanäle einer Schar
jeweils strömungstechnisch untereinander gleich sind,
d. h. daß die Mikrokanäle 1a alle den gleichen Strö-
mungswiderstand besitzen. Die gleiche Bedingung gilt
für den Strömungswiderstand der Mikrokanäle 1b, wo-
bei aber die Strömungswiderstände der beiden Mikro-
kanalscharen 1a, 1b (im Verhältnis zueinander) un-
terschiedlich sein können. Gleicher Strömungswiderstand
kann dadurch erreicht werden, daß die Länge und der
Querschnitt für alle Mikrokanäle 1a gleich sind.

Das einer Verteilerkammer 3a, 3b zugeführte Edukt,
z. B. ein gasförmiger Reaktand, verteilt sich jeweils auf
die Mikrokanäle 1a, 1b. Die Zusammenführung der bei-
den Reaktanden erfolgt beim Eintritt in den Misch-/Re-
aktionsraum und wird im Folgenden anhand der Fig. 4
bis 6 näher beschrieben. In Fig. 4 ist der Mündungsquer-
schnitt des Mikrokanal-Mischers perspektivisch darge-
stellt.

In der obersten Lage oder Platte münden z. B. die
dem Edukt A zugeordneten Mikrokanäle 1a und in der
darauffolgenden darunterliegenden Lage oder Platte
die Mikrokanäle 1b des Eduktes B in den Misch-/Reak-
tionsraum ein. Darauf folgt wieder eine Lage oder Plat-
te mit den zum Edukt A gehörenden Mikrokanälen usw.
In Fig. 4 ist auch schematisch dargestellt, wie die in den
Mikrokanälen geführten Fluidfäden als Freistrahlen 6a,
6b in den Misch-/Reaktionsraum eintreten und sich mit
zunehmender Entfernung von der Mündung unterein-
ander vermischen. Die Mischung erfolgt dabei durch
Diffusion und/oder Turbulenz, während in den Mikro-
kanälen in der Regel laminare Strömungsbedingungen

6

vorherrschen. Gleichzeitig mit der Mischung setzt auch
die Reaktion der Edukte A, B ein. Das Reaktionspro-
dukt wird am Ende der Misch-/Reaktionskammer abge-
nommen (s. Fig. 3). In Fig. 5 ist noch einmal gezeigt, in
welcher räumlichen Reihenfolge die Edukte A, B am
Mündungsquerschnitt in den Misch-/Reaktionsraum
eintreffen. Eine Schicht mit Fluidfäden des Eduktes A
grenzt also jeweils an eine Schicht der Fluidfäden des
Eduktes B an. Die Anordnung kann natürlich auch um
90° gedreht werden, so daß die Schichten nebeneinan-
der liegen.

Eine Variante, bei der die Fluidfäden der Edukte A, B
schachbrettartig in den Misch-/Reaktionsraum eintre-
ten, ist in Fig. 6 gezeigt. Praktisch läßt sich eine derarti-
ge Anordnung realisieren, wenn Platten mit Mikrokanä-
len 1a, 1b in Pfeilrichtung (s. Fig. 6) übereinander gesta-
pelt werden und die Anordnung so getroffen wird, daß
die Kanalmündung einer Lage gegenüber den Mündun-
gen der darauffolgenden Lage versetzt wird.

Der Mikrokanal-Mischer gemäß Fig. 3 kann auch in
der Weise modifiziert werden, daß drei oder mehr
Edukte in jeweils getrennte Scharen von Mikrokanälen
aufgeteilt werden, die dann im Misch-/Reaktionsraum
zusammengeführt werden. Eine verfahrenstechnisch in-
teressante Variante besteht darin, daß das dritte Edukt
aus einem temperierten inerten Fluid besteht. Die Fluid-
fäden werden dann im Mikrokanal-Mischer so geführt,
daß in Nachbarschaft zu einem Freistrahle eines Eduktes
ein Freistrahle des temperierten inerten Fluids zu Heiz-
oder Kühlzwecken in den Misch-/Reaktionsraum einge-
speist wird.

Beispiele

Zur Beurteilung des Vermischungsverhaltens ver-
schiedenster Apparaturen wird in der Literatur die Azo-
kupplungsreaktion von α -Naphtol mit 4-Sulfonsäu-
rebzoldiazoniumsalz eingesetzt [2, 8, 9]. Diese Reak-
tion entspricht dem o.g. Reaktionsschema einer Reak-
tion mit Folgereaktionen, wobei das Folgeprodukt auf
einfache Weise mit Hilfe von Absorptionsspektren ana-
lysiert werden kann. Die Güte des Mischvorganges wird
dabei durch die Selektivität an Folgeprodukt S, Xs, be-
urteilt. Je mehr S gebildet wird, desto schlechter ist die
Vermischung.

Das Verfahren zur Durchführung schneller chemi-
scher Reaktionen mittels Mikrostruktur-Mischung wur-
de in der in Fig. 7 dargestellten Apparatur untersucht.
Sie besteht aus den Vorlagebehältern 5 für die Aus-
gangskomponenten A und B, den Dosier- und Regelvor-
richtungen 6, Filtern 7 zum Schutz des Mikrostruktur-
Mischers vor Verstopfungen, dem Mikrostruktur-Mi-
scher 8 und dem Auffangbehälter 9 für das Produktge-
misch. Der verwendete Mikrostruktur-Mischer erzeugt
Freistrahlen der Dimension 100 μ m Breite und 70 μ m
Höhe. Die Strahlen waren so angeordnet, daß die Kom-
ponenten A bzw. B in abwechselnd übereinander ange-
ordneten Schichten aus dem Mischer austraten.

Es wurden Volumenstromverhältnisse $\alpha = V_A/V_B$
von 10 und 20 eingestellt. Dabei wurde bei Leistungs-
kennzahlen Ψ größer 10^5 gearbeitet. Die reaktionskine-
tischen Daten und die Vorschrift für die Anwendung der
Modellreaktionen sind der Literatur zu entnehmen [2, 8,
9, 10].

Gefahren wurde mit einem stöchiometrischen Ver-
hältnis von 1,05 und einer konstanten Naphtol-Aus-
gangskonzentration von 1,37 mol/m³. Die Leistungs-
kennzahl Ψ berechnet sich folgendermaßen:

DE 44 33 439 A1

7

8

$$\Psi = \frac{(\Delta p_{\text{Naph}} \cdot V_{\text{Naph}} + \Delta p_{\text{Sulf}} \cdot V_{\text{Sulf}}) / \{k_2 \cdot c_{a0} \cdot \eta \cdot (V_{\text{Naph}} + V_{\text{Sulf}})\}}{1}$$

mit

Δp_{Naph} Stoßverlust Naphtol-Lösung im Mischer
 Δp_{Sulf} Stoßverlust Sulfanilsäure-Lösung im Mischer
 V_{Naph} Volumenstrom Naphtol-Lösung
 V_{Sulf} Volumenstrom Sulfanilsäure-Lösung
 k_2 Reaktionsgeschwindigkeitskonstante Folgereaktion
 c_{a0} Ausgangskonzentration Naphtol
 η dyn. Viskosität

In Fig. 8 ist die Selektivität an unerwünschtem Folgeprodukt X_S gegen die Leistungskennzahl Ψ aufgetragen.

Es zeigte sich, daß für das Volumenstromverhältnis α von 10 und 20 bei gleicher Leistungskennzahl bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (Kurven O und □) wesentlich weniger unerwünschtes Folgeprodukt gebildet wird als bei Verwendung von Düsenmischern nach dem Stand der Technik (Düsenmischer mit Glatstrahldüse, Düsenmischer mit Glatstrahldüse und Einbau zur Verhinderung von Rückvermischung) (gestrichelte Kurven). Die den gestrichelten Kurven entsprechenden Daten sind der Literatur entnommen [2, 8, 9, 10]. Dieser Befund ist völlig überraschend, wenn man von der bestehenden Lehrmeinung ausgeht, daß die Mischintensität allein durch die Leistungskennzahl und die Stoffdaten bestimmt wird.

Literatur

- [1] Brodkey, R. S. (ed.)
 Turbulence in Mixing Operations
 Theory and Application to Mixing and Reaction
 Academic Press, Inc., New York, San Francisco, London, 1975.
- [2] Tebel, K. H.; May, H.-O.
 Der Freistrahrohrreaktor — Ein effektives Reaktordesign zur Unterdrückung von Selektivitätsverlusten durch schnelle, unerwünschte Folgereaktionen
 Chem.-Ing.-Tech. MS 1708/88, Synopse in Chem.-Ing.-Tech 60, 1988.
- [3] Zehner, P.; Bittins, K.
 Düsenreaktoren
 Fortschr. Verf. Technik 23, 1985, 373.
- [4] Tosun, G.
 A Study of Micromixing in Tee Mixers
 Ind. Eng. Chem. Res. 26, 1987, 1184.
- [5] Batchelor, G. K.
 Small-scale Variation of Convected Quantities Like Temperature in Turbulent Fluid
 J. Fluid Mech. 5, 1959, 113.
- [6] Baldyga, J.; Bourne, J. R.
 Micromixing in Inhomogeneous Turbulence
 Chem. Eng. Sci. 43, 1988, 107.
- [7] Schmidt, P.; Caesar, C.
 Mikroreaktor zur Durchführung chemischer Reaktionen mit starker Wärmetönung und Offenlegungsschrift DE 39 26 466 A1.
- [8] Brodkey, R. S.
 Fundamentals of Turbulent Motion, Mixing and Kinetics
 Chem. Eng. Commun. 8, 1981, 1.
- [9] Bourne, J. R.; Hilber, C.; Tovstiga, G. Kinetics of the Azo Coupling Reactions Between 1-Naphthol and Diazo Coupling Sulfanilic Acid
 Chem. Eng. Commun. 37, 1985, 293.

[10] Bourne, J. R.; Kozicki, F.; Rys, P.
 Mixing and Fast Chemical Reaction I:
 Test Reactions to Determine Segregation
 Chem. Eng. Sci. 36, 1981, 1643.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Durchführung chemischer Reaktionen zwischen gasförmigen und/oder flüssigen Reaktionspartnern (Edukte), bei dem mindestens zwei Edukte A, B durch eine ihnen jeweils zugeordnete Schar von Mikrokanälen in räumlich getrennte Fluidfäden aufgeteilt werden, die anschließend in einen gemeinsamen Misch- und Reaktionsraum austreten, dadurch gekennzeichnet, daß man die Fluidfäden der Edukte A, B als Freistrahlen mit für das jeweilige Edukt gleichen Strömungsgeschwindigkeiten in den Misch-/Reaktionsraum austreten läßt, wobei jeder Freistrahle eines Eduktes A in unmittelbarer Nachbarschaft zu einem Freistrahle eines anderen Eduktes B in den Misch- und Reaktionsraum geführt wird und sich die benachbarten Freistrahlen durch Diffusion und/oder Turbulenz miteinander vermischen.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß in den Mikrokanälen laminare Strömungsbedingungen für die Edukte A, B aufrechterhalten werden.
3. Verfahren nach Anspruch 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Fluidfäden der Edukte A, B in abwechselnd übereinanderliegenden oder nebeneinanderliegenden Schichten in den Reaktionsraum austreten.
4. Verfahren nach Anspruch 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Fluidfäden der Edukte A, B schachbrettartig in den Reaktionsraum austreten.
5. Verfahren nach Anspruch 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß der Durchmesser bzw. die Dicke der Freistrahlen am Eintritt in den Misch-/Reaktionsraum auf einen Wert zwischen 20 µm und 250 µm, vorzugsweise zwischen 50 µm und 150 µm eingestellt wird.
6. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß das Verhältnis von Mittenabstand benachbarter Freistrahlen zu Durchmesser der Freistrahlen auf Werte zwischen 1,1 bis 2, vorzugsweise 1,3 bis 1,5 eingestellt wird.
7. Verfahren nach Anspruch 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß in Nachbarschaft zu einem Freistrahle eines Eduktes zusätzlich ein Freistrahle eines temperierten Inertfluids zu Heiz- oder Kühlzwecken in den Misch-/Reaktionsraum eingespeist wird.

Hierzu 7 Seite(n) Zeichnungen

ZEICHNUNGEN SEITE 1

Nummer:

DE 44 33 439 A1

Int. Cl.®:

B 01 J 19/00

Offenlegungstag:

21. März 1996

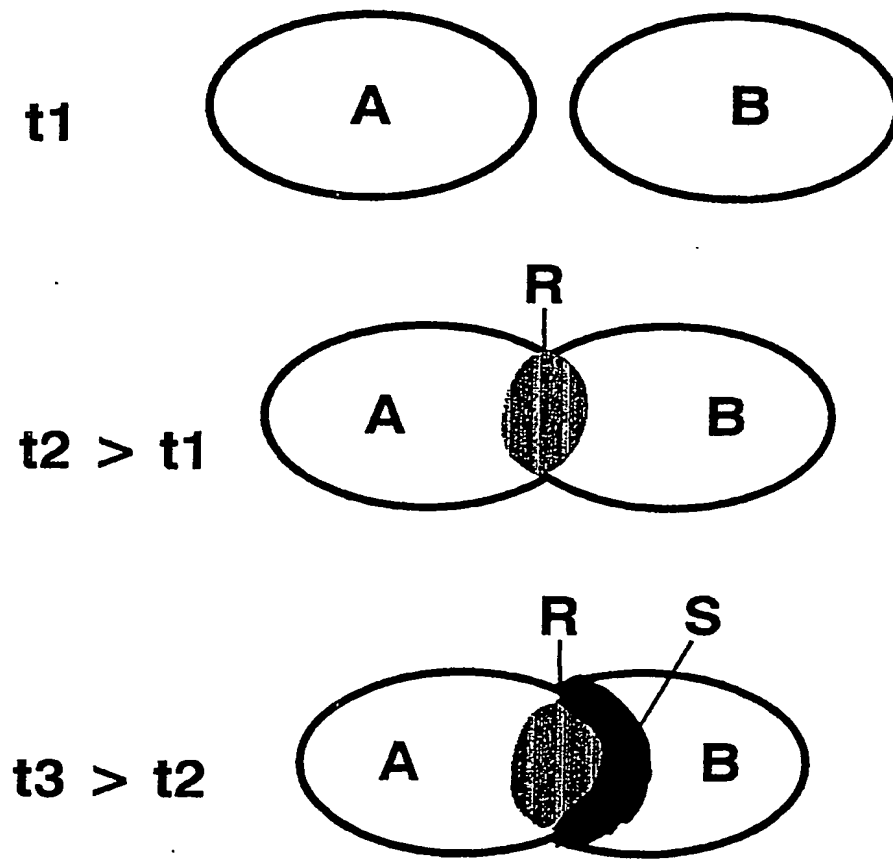


Fig. 1

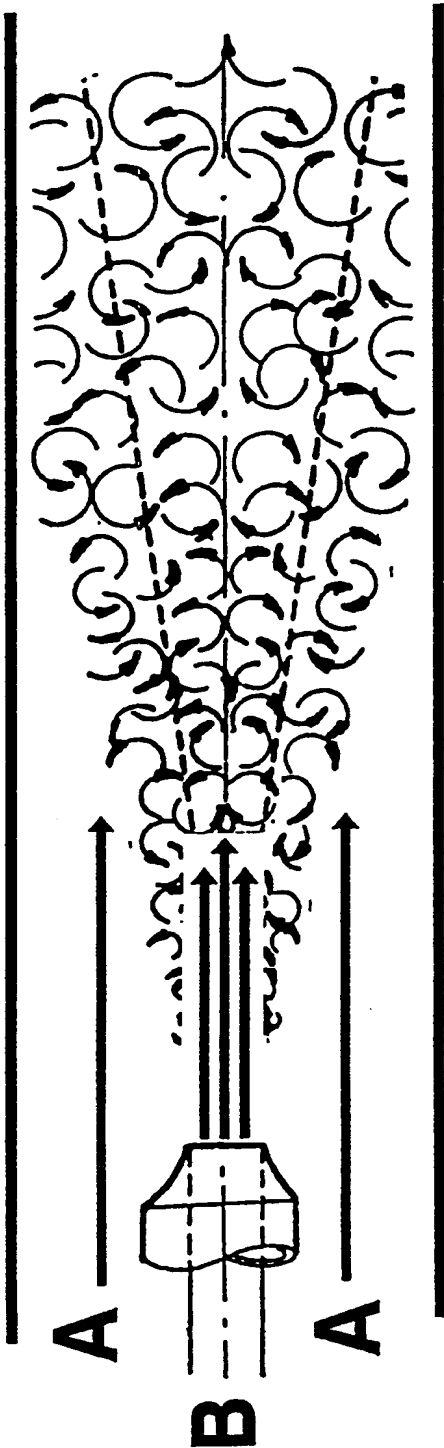


Fig. 2

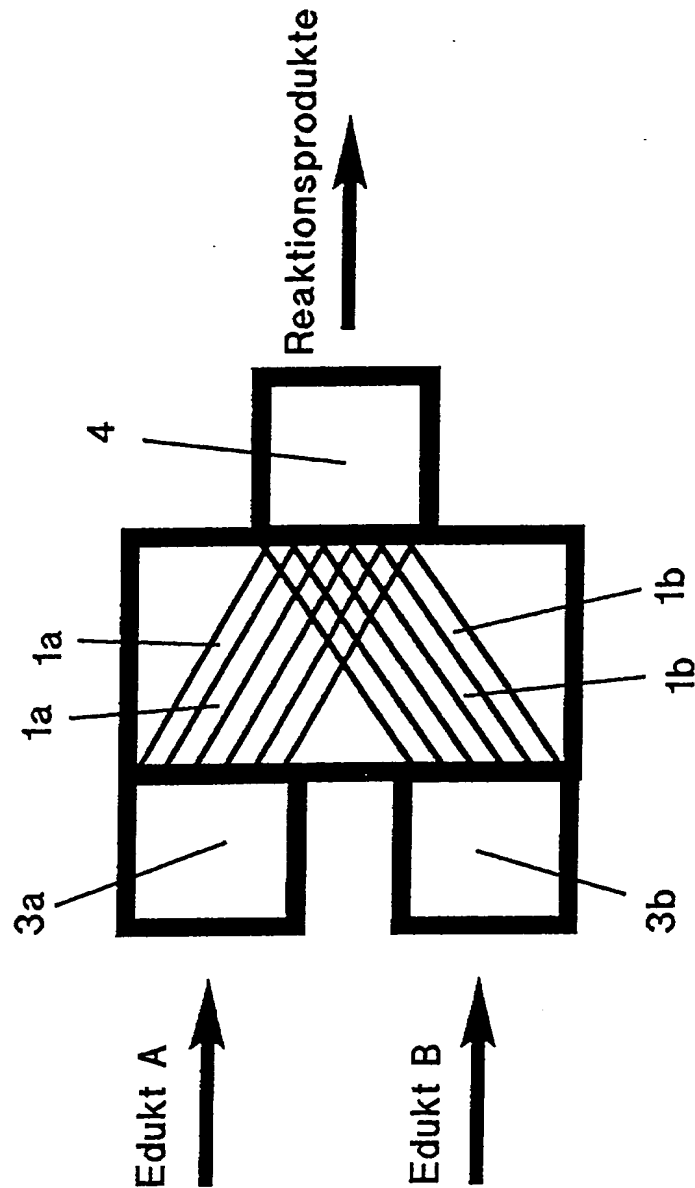


Fig. 3

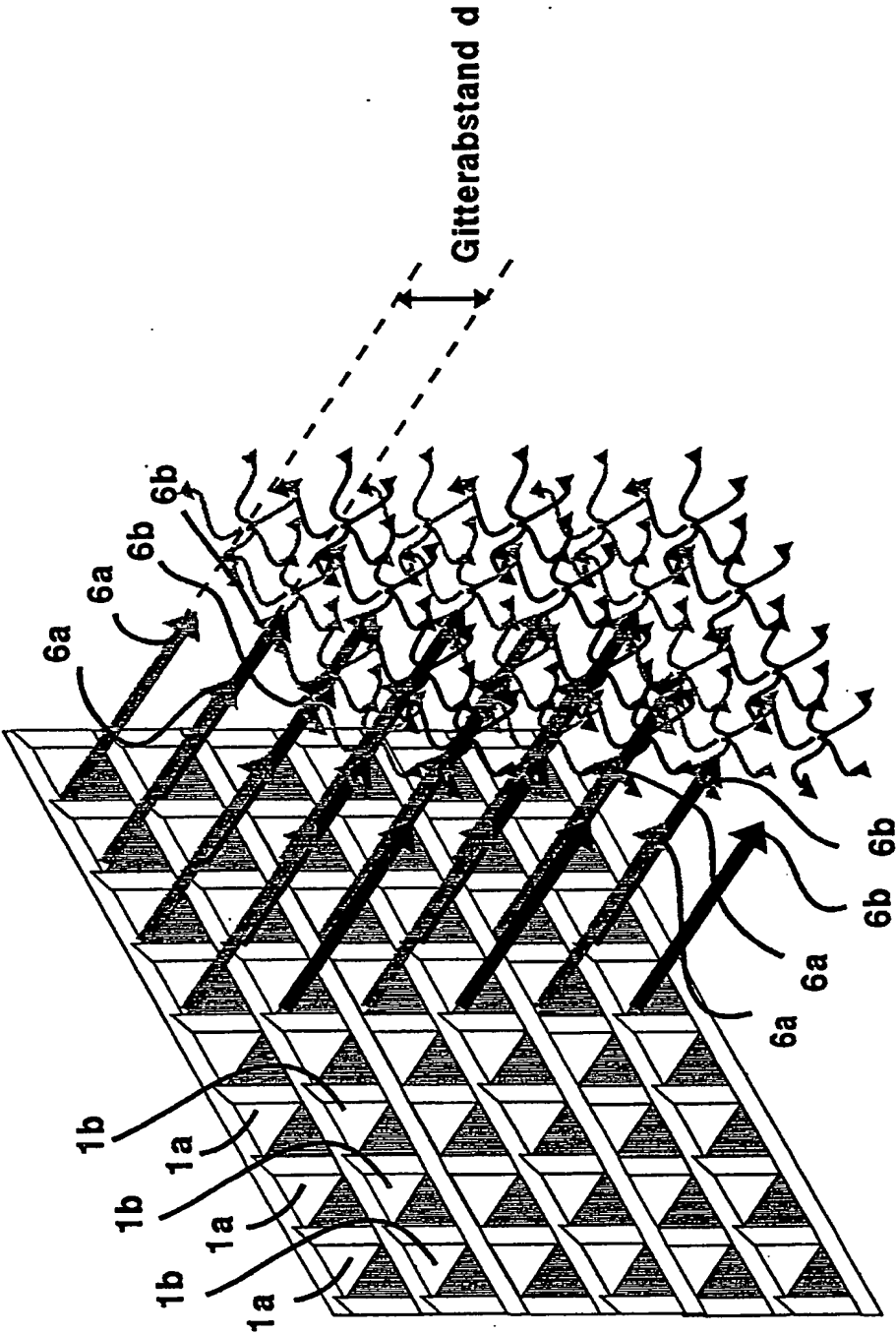


Fig. 4

A A A A A A
B B B B B B
A A A A A A
B B B B B B
A A A A A A
B B B B B B

Fig. 5

A B A B A B
B A B A B A
A B A B A B
B A B A B A
A B A B A B
B A B A B A

Fig. 6

ZEICHNUNGEN SEITE 8

Nummer: DE 44 33 439 A1
Int. Cl.⁶: B 01 J 19/00
Offenlegungstag: 21. März 1998

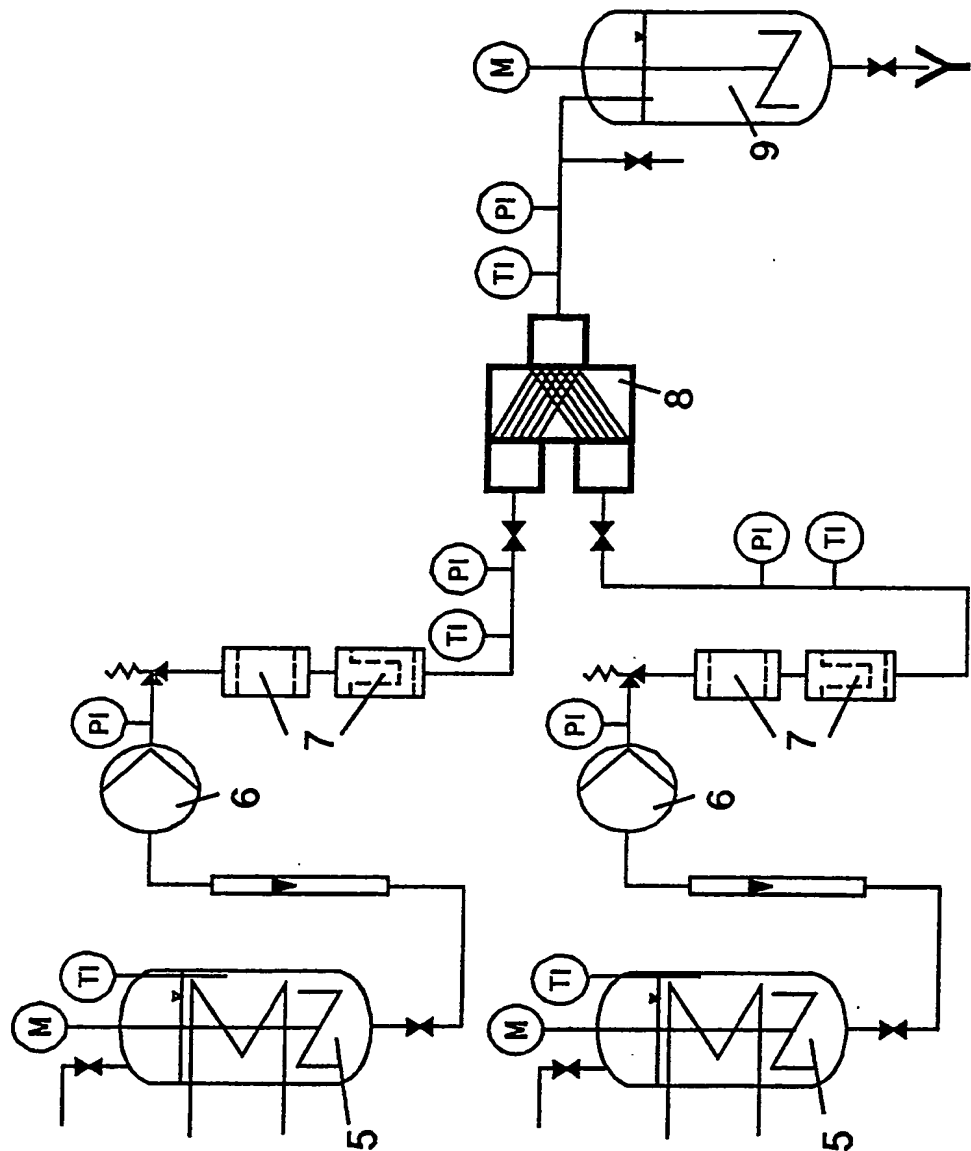


Fig. 7

ZEICHNUNGEN SEITE 7

Nummer:
Int. Cl.⁶:
Offenlegungstag:

DE 44 33 439 A1
B 01 J 19/00
21. März 1996

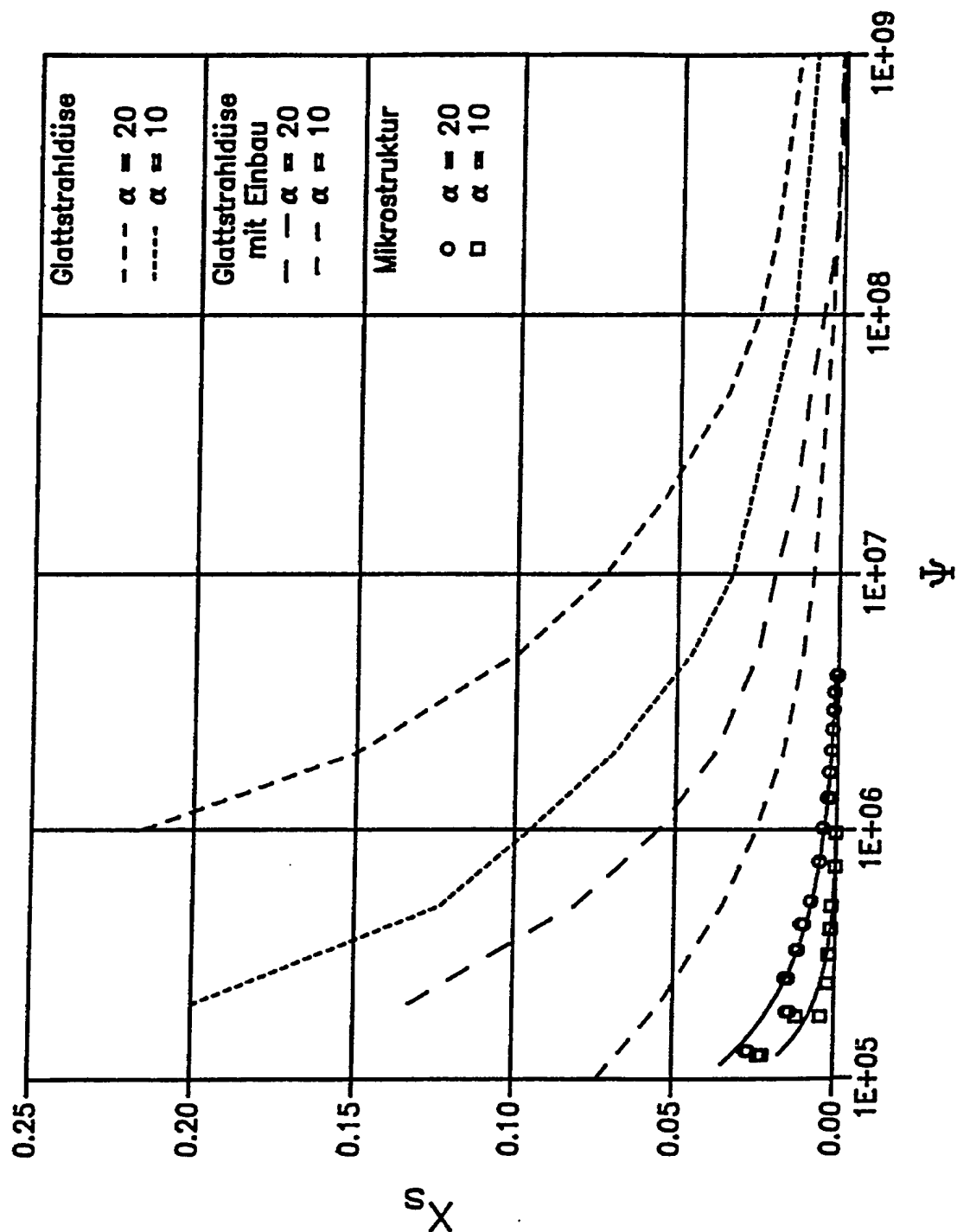


Fig. 8

This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REPERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images
problems checked, please do not report the
problems to the IFW Image Problem Mailbox**